DOMANDA DI BREVETTO PER INVENZIONE NOUSTRIALE, DEPOSITO RISERVE, ANTICIPATA ACCESSIBILITA AL PUBBLICO  A. RICHIGURETT ()  I) Descritadors  S. JORDAN STAILANES (RILAND)  Residence  OTRA (SIS CO., LTD  Residence  OTRA (SIS CO., LTD  Residence  OTRA (SIS PORT)  RESIDENCE  RESIDEN	UFFICIO CENTRALE BREVETTI - ROMA	EL COMMERCIO E DELL'ARTIGIANATO	
A RECHERETE S. D. A. S. CONTROL MILANCE S. D. A. Manufaces S. Donato Milanese (Milane)  3) Demandaces S. Donato Milanese (Milane)  3) Demandaces S. Donato Milanese (Milane)  4) Demandaces OSARA GAS CO., LTD  8. MAPPRESENTANT FOR INCHROSOFT PRISES U.W. E. Control Carlo et all Fr. Control Carlo et all Fr. Control et all Fr. Maritano  10. INCLO (LETTIVO DESTINATARIO V. E. S. D. A Servetti, Licenze e Documentazione  10. E. Maritano  10. PROCESSO PER LA RIDUZIONE CATALITICA DI NO. REI FORT DI COMBUSTICAE  11. PROCESSO PER LA RIDUZIONE CATALITICA DI NO. REI FORT DI COMBUSTICAE  11. PROCESSO PER LA RIDUZIONE CATALITICA DI NO. REI FORT DI COMBUSTICAE  11. RELUXSI Giusta Capana cana  11. BELLUSSI Giusta Collus Riberte  11. DE CALLUSSI Giusta Collus Riberte  12. C. CENTRO ABULTATO DI RACCOLTA COLLUR DI MICRORAMISMI, describaçione  13. C. CENTRO ABULTATO DI RACCOLTA COLLUR DI MICRORAMISMI, describaçione  14. DE COLUMENTATIONE ALLEANA  15. COLUMENTATIONE ALLEANA  16. C. CENTRO ABULTATO DI RACCOLTA COLLUR DI MICRORAMISMI, describaçione  16. C. D. C. D. C. D. C. D. C. C. CENTRO ABULTATO DI RACCOLTA COLLUR DI MICRORAMISMI, describazione al responsa control describazione control describazione di control describazione		USTRIALE, DEPOSITO RISERVE, ANTICIPATA ACCESSIBILITÀ A	L PUBBLICO
Descriptions   S. Donato Milanese (Rilano)   10 personators   OSAR GAS CO., LTD   O	•	1	L ' J
The Anticata of Casa and Casa	1) Denominazione EMIRICERCHE S.p./	4.	
SARA SAS CO., LID  Antidona	Residenza S. Donato Milane:	se (Milano)	07562880151
8. ANTRESTRANT OUR RECOURT PRESSO CULC. 8.  Cappener assess CLORAL Carlo et altri  cappener assess cappener assess CLORAL Carlo et altri  cappener assess ca	21 Denominazione   OSAKA GAS COLTI		
EMPRESENTANT OF MICHIGENT PRESSO L'U.S.  copume some CIORI Carle ed altri  seminazione Michigi di propriettata  seminazione di proprietta di propriettata di propriettata di propriettata di propriettata di propriettata di propriettata di proprietta di prop		(0)	
CONTINUAL DISCONTRA ALLEGATA  ANTICIPATA ACCESSIBILITA AL PUBBLICO: SI NO SESTIMATA: OATA SEST			
### F. Maritano    C. DOMICIO ELTIVO DESTINATARIO   VEGI SOPIA   C. DOMICIO EL CONTRO DESTINATARIO   VEGI SOPIA   C. DOMICIO EL CONTRO DESTINATARIO   VEGI SOPIA   C. DOMICIO EL CONTRO DE MACCOLTA COLTURE DI MICRORGANISMI, deponizazione   C. DOMICIO EL CONTRO DE MACCOLTA COLTURE DI MICRORGANISMI, deponizazione   C. DOMICIO EL CONTRO DI MACCOLTA COLTURE DI MICRORGANISMI, deponizazione   C. DOMICIO EL CONTRO DI MACCOLTA COLTURE DI MICRORGANISMI, deponizazione   C. DOMICIO EL CONTRO DI MACCOLTA COLTURE DI MICRORGANISMI, deponizazione   C. DOMICIO EL CONTRO DI MACCOLTA COLTURE DI MICRORGANISMI, deponizazione   C. DOMICIO EL CONTRO DI MACCOLTA COLTURE DI MICRORGANISMI, deponizazione   C. DOMICIO EL CONTRO DI MACCOLTA COLTURE DI MICRORGANISMI, deponizazione   C. DOMICIO EL CONTRO DI MACCOLTA COLTURE DI MICRORGANISMI, deponizazione   C. DOMICIO EL CONTRO DI MICRORGANISMI, deponizazione   C. DOMICIO EL	CIOUI Camla ad ale	<del>-</del>	0.7562850151
TABATIA TAKESSIBILITÀ AL PUBBLICO:  ANTICUPATA ACCESSIBILITÀ AL PUBBLICO:  SI NO SE ESTANZA: DATA   //   //   //   //   //   //   //	, F#101		
C. DOMICIUS ELETINO DESTINATARIO VEGI SEDETA  "IN PROCESSO PER LA RIDUZIONE CATALITICA DI NO REI FUNI DI COMBUSTIONE"  ANTICIPATA ACCESSIBILITÀ AL PUBBLICO: SI NO SE SETANZA: DATA IN//// PPROTOCOLLO SELIVATI  CORPONE DERI IN PUBBLICO: SI NO SERIVATI SALITATIO DI ROSI REI FUNI DI COMBUSTIONE"  ANTICIPATA ACCESSIBILITÀ AL PUBBLICO: SI NO SERIVATIO DI ROSI REI FUNI DI COMBUSTIONE  ANTICIPATA ACCESSIBILITÀ AL PUBBLICO: SI NO SERIVATIO DI REI FUNI DI COMBUSTIONE  ANTICIPATA ACCESSIBILITÀ AL PUBBLICO: SI NO SERIVATIO DI ROSI RATIO DI RACCOLTA COLTURE DI MICRORGANISMI, deseminazione  1) SABATINO Luigina Naria Flora  1) NESSURA  2) SABATINO Luigina Naria Flora  1) NESSURA  2) NESSURA  2) NESSURA  2) NESSURA  3) NESSURA  3) NESSURA  4 LA ANNOTAZIONE ALLEGATA  N. EL.  4 LECTERA ABILITATO DI RACCOLTA COLTURE DI MICRORGANISMI, deseminazione  10c. 1) LI 2550 n. p.p.; LI RESTONICO CON FISSEVA)  10c. 1) LI 2550 n. p.p.; LI RESTONICO CON FISSEVA  10c. 2) LI 2550 n. p.p.; LI RESTONICO CON FISSEVA  10c. 3) LI 2550 n. p.p.; LI RESTONICO CON FISSEVA  10c. 3) LI 2550 n. p.p.; LI RESTONICO CON FISSEVA  10c. 4) LI 2550 n. p.p.; LI RESTONICO CON FISSEVA  10c. 4) LI 2550 n. p.p.; LI RESTONICO CON FISSEVA  10c. 4) LI 2550 n. p.p.; LI RESTONICO CON FISSEVA  10c. 4) LI 2550 n. p.p.; LI RESTONICO CON FISSEVA  10c. 4) LI 2550 n. p.p.; LI RESTONICO CON FISSEVA  10c. 4) LI 2550 n. p.p.; LI RESTONICO CON FISSEVA  10c. 4) LI 2550 n. p.p.; LI RESTONICO CON FISSEVA  10c. 4) LI 2550 n. p.p.; LI RESTONICO CON FISSEVA  10c. 5) LI 2550 n. p.p.; LI RESTONICO CON FISSEVA  10c. 6) LI 2550 n. p.p.; LI RESTONICO CON FISSEVA  10c. 7) LI 2550 n. p.p.; LI RESTONICO CON FISSEVA  10c. 7) LI 2550 n. p.p.; LI RESTONICO CON FISSEVA  10c. 7) LI 2550 n. p.p.; L			<del></del>
O. TITOLO  Chara processo PER LA RIOUZIONE CATALITICA OI NO REI FURI DI CORBUSTIORE"  ANTICIPATA ACCESSIBILITÀ AL PUBBLICO: S.   NO   SE ISTANZA: DATA     /   PROTOCOLLO         PROTOCOLLO			cap [
DITIOLO  dasse processa (selicitaci)  PROCESSO PER LA RIDUZIONE CATALITICA DI NO NEI FURI DI CORBUSTIORE  ANTICIPATA ACCESSIBILITÀ AL PUBBLICO: SI UN DU SE ISTANZA: DATA UN'IL PROTOCOLLO UN'IL	1		
ANTICIPATA ACCESSIBILITA AL PUBBLICO: SI NO SE STANZA: DATA   //   NPROTOCOLLO			
AMTICIPATA ACCESSIBILITA AL PUBBLICO: SI   NO   SE ISTANZA: DATA   //   N + PROTOCOLLO		• • • • • • • • • • • • • • • • • • • •	<del></del>
Cognome name  TABATA Takesis  TABAT	" PROCESSO PER LA RIDUZIONE	CATALITICA DI NO REI FUNI DI CORBUSTIONE	
Cognome name  TABATA Takesis  TABAT		· ·	
Cognome name  TABATA Takesis  TABAT Takesis  TABAT Takesis  TABAT Takesis  TABAT Takesis  TABAT Takesis  TABAT		<del>;</del>	
Cognome name  TABATA Takesis  TABAT Takesis  TABAT Takesis  TABAT Takesis  TABAT Takesis  TABAT Takesis  TABAT	ANTICIPATA ACCESSIBILITÀ AL DIPRILICO. CL.	, , , , , , , , , , , , , , , , , , ,	
SABATINO Luigina Maria Flora  (c) CARTON ABILITATO DI RACCOLTA COLTURE DI MICRORGANISMI, denominazione  (c) CENTRO ABILITATO DI RACCOLTA COLTURE DI MICRORGANISMI, denominazione  (c) CENTRO ABILITATO DI RACCOLTA COLTURE DI MICRORGANISMI, denominazione  (c) CENTRO ABILITATO DI RACCOLTA COLTURE DI MICRORGANISMI, denominazione  (c) CENTRO ABILITATO DI RACCOLTA COLTURE DI MICRORGANISMI, denominazione  (c) CENTRO ABILITATO DI RACCOLTA COLTURE DI MICRORGANISMI, denominazione  (c) CENTRO ABILITATO DI RACCOLTA COLTURE DI MICRORGANISMI, denominazione  (d) COCUMENTAZIONE ALLEGATA  (d) COCUMENTAZIONE  (d) COCUMENTAZIONE ALLEGATA  (d) COCUMENTAZIONE ALLEGATA	5 10005070B; 054150151	. CI	
F. PRIORITA  nazione o organizzazione  tipo di priorità  numero di donanda data di deposito  1)	1) BELLUSSI Giuseppe	3) TABATA Takesii	
nazione o organizzazione  tipo di priorità numero di domanda  data di deposito  SR Data in Prosocollo  1)   nessuna  C. CENTRO ABILITATO DI RACCOLTA COLTURE DI MICRORGANISMI, denominazione  H. ANNOTAZIONI SPECIALI  Letterad'incarico (con riserva)  DOCUMENTAZIONE ALLEGATA  N. et.  Occ. 1)   1 PESTI n. pag. 2   riazzunto con disegno principale, descrizione a rivendicazioni (obbligatorio 1 ezemplare)  DOC. 2)   1 PESTI n. pag. 2   riazzunto con disegno principale, descrizione a rivendicazioni (obbligatorio 1 ezemplare)  DOC. 3)   1 PESTI n. pag. 4   riazzunto con disegno principale, descrizione a rivendicazioni (obbligatorio 1 ezemplare)  DOC. 4)   1 PESTI n. pag. 4   riazzunto con disegno principale, descrizione a rivendicazioni (obbligatorio 1 ezemplare)  DOC. 5)   0 RS   lettura i recombagno principale, descrizione procura generale  DOC. 6)   0 RS   designazione inventore  DOC. 7)   0   conficanti di priorità con traducione in italiano  DOC. 6)   0 RS   autorizzazione a autorizzazione o atto di cessione  3) antestas di versamento, totale fire   565.000 (Cinquecentosessantacinquesila)   obbligatorio  COMPILATO IL 0/2    19 9   FIRMA DEL(I) RICHIEDENTE (I)   Il sandatacio Dr. Carlo Cioni  CONTINUA SUNO   SI  UFFICIO PROVINCIALE IND. COMM. ART. DI   MILANO   codice \$\frac{1}{2}\$  VERBALE DI DIPOSITO   NUMERO DI GOMANDA   MI 93 A 002337   Reg.a  NOVEMBALE  Ili giono   Quattro   Novembre   ligiti inglianno) presentato a me satroscritto la presente domanda, correctate di a.   Occ. 10	2) L SABATINO Luigina Maria Flo	ora 4) KOKITSU Mikako	
nazione organizzazione  1) nessuna  1) nes	F. PRIORITA		- SCIDGLIMENTO RISERVE
G. CENTRO ABILITATO DI RACCOLTA COLTURE DI MICRORGANISMI, denominazione  H. ANNOTAZIONI SPECIALI  — Letterad'incarico (con riserva)  — Dichiarazione Art. 4 del D.M. del 3 Aprile 1981 (con riserva)  DOCUMENTAZIONE ALLEGATA  N. es.  Occ. 1) 11 PROV n. pag. 21 riazsunto con disegno principale, descrizione e rivendicazioni (obbligatorio 1 esemplare)  Doc. 2) 1 PROV n. pag. 21 riazsunto con disegno principale, descrizione e rivendicazioni (obbligatorio 1 esemplare)  Doc. 3) 1 PS disegno (obbligatorio se citato in descrizione, 1 esemplare)  Doc. 4) 1 PS designazione inventore conferimento procurs generale  Doc. 5) 0 PS decumenti di priorità con traduzione in italiano  Doc. 6) 0 PS autorizzazione o ano di cessione  Doc. 7) 0 nominazione o ano di cessione  Doc. 7) 0 nominazione o ano di cessione  Doc. 7) 0 nominazione o ano di cessione  Doc. 9) naresta di versamento. totale lire 555.000.— (Cinquecentosessantacinquemila).— obbligatorio completo del richiedente  SI antesta di versamento. totale lire 555.000.— (Cinquecentosessantacinquemila).— obbligatorio confinua siyno SII  DEL PRESENTE ATTO SI RICHIEDE COPIA AUTENTICA SI/NO SII  UFFICIO PROVINCIALE IND. COMM. ART. DI MILANO  VERBALE DI DEPOSITO NUMERO DI DOMANDA MI 93 A 002337 Rega  L'anno millenovectanto NUMERO DI DOMANDA MI 93 A 002337 Rega  L'anno millenovectanto Numero di DOMANDA MI 93 A 002337 Rega  L'anno millenovectanto Numero di DOMANDA MI 93 A 002337 Rega  L'anno millenovectanto Numero di DOMANDA MI 93 A 002337 Rega  L'anno millenovectanto Numero di DOMANDA MI 93 A 002337 Rega  NOVANTATERE DEPOSITO NUMERO DI DOMANDA MI 93 A 002337 Rega  L'anno millenovectanto Numero di DOMANDA MI 93 A 002337 Rega  NOVANTATERE DEPOSITO NUMERO DI DOMANDA MI 93 A 002337 Rega  L'anno millenovectanto Numero di DOMANDA MI 93 A 002337 Rega  Novantatere Jajarga Quattro	nazione o organizzazione tipo di prio		- Data Nº Protocollo
H. ANNOTAZIONI SPECIALI  — Letterad'incarico (con riserva)  — Dichiarazione Art. 4 del D.M. del 3 Aprile 1981 (con riserva)  — Oichiarazione Art. 4 del D.M. del 3 Aprile 1981 (con riserva)  — Oichiarazione Art. 4 del D.M. del 3 Aprile 1981 (con riserva)  — Occumentazione Allegata  N. es.  — Occumentazione (obbligatorio se citato in descrizione e rivendicazioni (obbligatorio 1 esemplare)  — Il PROV.  — Occumenta singular priorità  — Occumenta di priorità con traduzione in italiano  — Confronta singule priorità  — Occumenta di priorità con traduzione in italiano  — Confronta singule priorità  — Occumenta di versamento. Totale fire  — Obbligatorio  Occumentazione del richiadente  9 marchae da bollo ger attestato di brevetto di fire  — Obbligatorio  COMPILATO IL	nessuna	[	
H. ANNOTAZIONI SPECIALI  — Letterad'incarico (con riserva)  — Dichiarazione Art. 4 del D.M. del 3 Aprile 1981 (con riserva)  DOCUMENTAZIONE ALLEGATA  N. **.  Oc. 1) 1 2997 n. pag. 2 1 riassunto con disegno principale, descrizione e rivendicazioni (abbligatorio 1 esamplare)  Oc. 1) 1 2997 n. pag. 2 1 riassunto con disegno principale, descrizione, 1 esamplare  Oc. 1) 1 2997 n. pag. 2 1 riassunto con disegno principale, descrizione, 1 esamplare  Oc. 1) 1 2997 n. pag. 2 1 riassunto con disegno principale, descrizione, 1 esamplare  Oc. 3) 1 3 85	2)		
H. ANNOTAZIONI SPECIALI  — Letterad'incarico (con riserva)  — Dichiarazione Art. 4 del D.M. del 3 Aprile 1981 (con riserva)  DOCUMENTAZIONE ALLEGATA  N. **.  Oc. 1) 1 2997 n. pag. 2 1 riassunto con disegno principale, descrizione e rivendicazioni (abbligatorio 1 esamplare)  Oc. 1) 1 2997 n. pag. 2 1 riassunto con disegno principale, descrizione, 1 esamplare  Oc. 1) 1 2997 n. pag. 2 1 riassunto con disegno principale, descrizione, 1 esamplare  Oc. 1) 1 2997 n. pag. 2 1 riassunto con disegno principale, descrizione, 1 esamplare  Oc. 3) 1 3 85			
DOCUMENTAZIONE ALLEGATA  N. es.  Ooc. 1) 1 PROV n. pag. 21 riassunto con disegno principale, descrizione e rivendicazioni (obbligatorio 1 esemplare)  Ooc. 2) 1 PROV n. tav. 02 disegno (obbligatorio se citato in descrizione, 1 esemplare)  Ooc. 3) 1 RS   IENENE Kinazine procura o riferimento procura generale  Ooc. 4) 1 RS   designazione inventore  Ooc. 5) 0 RS   documenti di priorità con traduzione in italiano   confronta singole priorità  Ooc. 6) 0 RS   autorizzazione o anto di cessione   confronta singole priorità  Ooc. 7) 0   nominativo completo del richiedente  S) anestato di versamento, totale lire   565.000. (Cinquecentosessantacinquenila)   obbligatorio  COMPILATO IL 012 1 V 19 9 3   FIRMA DEL(I) RICHIEDENTE (I)   Il mandatario Dr. Garlo Cioni  COMPINIONA SI/NO   S   II  UFFICIO PROVINCIALE IND. COMM. ART. DI   ATLANO   codice \$\frac{1}{2}\$    VERBALE DI DEPOSITO   NUMERO DI DOMANDA   MI 93 A 002337   Reg.A   Novantatre   liquino   Quattro   del mese di   Novembre   liquino   Quattro   liquino   liquino			
N. es.  Ooc. 1)   1   PROV   n. paq.   2   riassunto con disegno principale, descrizione e rivendicazioni (abbligatorio 1 esemplare)   N. Protocallo   Ooc. 2)   1   PROV   n. tav.   O. 2   disegno (abbligatorio se citato in descrizione. 1 esemplare)	_ Dichiarazione Art	. 4 del D.M. del 3 Aprile 1981 (con riserva)	
N. es.  Ooc. 1)   1   PROV   n. paq.   2   riassunto con disegno principale, descrizione e rivendicazioni (abbligatorio 1 esemplare)   N. Protocallo   Ooc. 2)   1   PROV   n. tav.   O. 2   disegno (abbligatorio se citato in descrizione. 1 esemplare)			
N. es.  Ooc. 1)   1   PROV   n. paq.   2   riassunto con disegno principale, descrizione e rivendicazioni (abbligatorio 1 esemplare)   N. Protocallo   Ooc. 2)   1   PROV   n. tav.   O. 2   disegno (abbligatorio se citato in descrizione. 1 esemplare)			
Occ. 2) 1 PROV n. tav. Q2 disegno (obbligatorio se citato in descrizione. 1 esemplare	OCCUMENTATIONS ALLECATA		
Doc. 3) BIS   LEMME X MUNICIPAL PROCESS   LEMME X MUNICIPA	N. es.		
Doc. 4)	N. es.	on disegno principale, descrizione e rivendicazioni (obbligatorio 1 esemplare)	Data Nº Protocollo
Doc. 5) D RIS  documenti di priorità con traduzione in italiano  confronta singole priorità  Doc. 6) D RIS  autorizzazione o atto di cessione  Doc. 7) LO  nominativo completo del richiedente  8) artestato di versamento, totale lire  565.000.= (Cinquecentosessantacinquemila).=  obbligatorio  COMPILATO IL DIZIIV-1993  FIRMA DEL(I) RICHIEDENTE (I)  DEL PRESENTE ATTO SI RICHIEDE COPIA AUTENTICA SI/NO SI  UFFICIO PROVINCIALE IND. COMM. ART. DI  41LANO  VERBALE DI DEPOSITO  NUMERO DI DOMANDA  MI 93 A 002337 V  Reg.A  Novantatre  J. il giorno  Quattro  J. del mese di  Novembre  il (i) richiedente (i) sopraindicato (i) ha(hanno) presentato a me sottoscritto la presente domanda, corredate di n.  Ogli aggiuntivi per la concessione del brevetto soprariportato.	N. es.  Doc. 1) 1 PROV n. pag. 21 diassunto co		Data Nº Protocollo
Doc. 6) O RS autorizzazione o arto di cessione	N. es.  Ooc. 1) 1 PROV n. pag. 21 riassunto co  Ooc. 2) 1 PROV n. tav. 02 disegno (ob	obligatorio sa citato in descrizione, 1 esemplare	Data Nº Protocollo
Doc. 7) O nominativo completo del richiedente  8) artestato di versamento, totale lire 565.000.= (Cinquecentosessantacinquesila).= obbligatorio  COMPILATO IL 01211/1993 FIRMA DEL(I) RICHIEDENTE (I) Il sandatario Dr. Carlo Cioni  CONTINUA SI/NO SI  DEL PRESENTE ATTO SI RICHIEDE COPIA AUTENTICA SI/NO SI  UFFICIO PROVINCIALE IND. COMM. ART. DI AILANO  VERBALE DI DEPOSITO NUMERO DI DOMANDA MI 93 A 002337 V Reg.A  L'anno millenovecento Novantatre il giorno Quattro del messe di Novembre il (i) richiedente (i) sopraindicato (i) ha(hanno) presentato a me sottoscritto la presente domanda, corredata di n. Ogli aggiuntivi per la concessione del brevetto soprariportato.	N. es.  Doc. 1) 1 PROV n. pag. 21 riassunto co  Doc. 2) 1 PROV n. tav. 02 disegno (ob  Doc. 3) 3 RIS lemma d'irr	obligatorio se citato in descrizione, 1 esemplare	Data No Protocollo
### Section of the complete of	N. es.  Doc. 1) 1 PROV n. pag. 21 riassunto co  Doc. 2) 1 PROV n. tav. 02 disegno (ob  Doc. 3) 3 RIS lexeration  Doc. 4) 1 RIS designazion	pobligatorio sa citato in descrizione, 1 esemplare  sacious procura o riferimento procura generale	Data N° Protocollo
9) marche da bollo per artestato di brevetto di lire	N. es.   Oc. 1)   1   PROV   n. pag.   2   riassunto co	philigatorio se citato in descrizione, 1 esemplare  sacios: procura o riferimento procura generale  in inventore  di priorità con traduzione in italiano	Data N° Protocollo  / /
COMPILATO IL .017 1 1 1993 FIRMA DEL(I) RICHIEDENTE (I) II mandatario Dr. Carlo Cioni  CONTINUA SI/NO .SI  DEL PRESENTE ATTO SI RICHIEDE COPIA AUTENTICA SI/NO .S. II  UFFICIO PROVINCIALE IND. COMM. ART. DI	N. es.  Doc. 1) 1 PROV n. pag. 21 dissunto co  Doc. 2) 1 PROV n. tav. 02 disegno (ob  Doc. 3) 3 RIS lemma d'arc  Doc. 4) 1 RIS designazion  Doc. 5) 0 RIS autorizzazio	pobligatorio sa citato in descrizione, 1 esemplare  szansz procura o riferimento procura generale  di priorità con traduzione in italiano  one o atto di cessione	Data N° Protocollo  / /
CONTINUA SI/NO ISI  DEL PRESENTE ATTO SI RICHIEDE COPIA AUTENTICA SI/NO SII  UFFICIO PROVINCIALE IND. COMM. ART. DI MILANO  VERBALE DI DEPOSITO NUMERO DI DOMANDA MI 93 A 002337 V Reg.A  L'anno miltenovecento Novantatre Jil giorno Quattro del mese di Novembre il giorno quattro del mese di Novembre il giorno longia aggiuntivi per la concessione del brevetto soprariportato.	N. es.  Doc. 1) 1 PROV n. pag. 21 riassunto co  Doc. 2) 1 PROV n. tav. 02 disegno (ob  Doc. 3) 3 RIS lexeration  Doc. 4) 1 RIS designazion  Doc. 5) 0 RIS documenti of  Doc. 6) 0 RIS autorizzazion  Doc. 7) 0	pobligatorio sa citato in descrizione, 1 esemplare  sacres procura o riferimento procura generale  di priorità con traduzione in italiano  one o atto di cessione  completo del richiedente	Data N° Protocollo  / /
UFFICIO PROVINCIALE IND. COMM. ART. DI HILANO  VERBALE DI DEPOSITO NUMERO DI DOMANDA MI 93 A 002337 V Reg.A  L'anno millenovecento Novantatre Quattro del mese di Novembre il (i) richiedente(i) sopraindicato(i) ha(hanno) presentato a me sottoscritto la presente domanda, corredata di n. Oo logli aggiuntivi per la concessione del brevetto soprariportato.	N. es.   Ooc. 1)   1   PROV   n. pag.   2   riassunto co	pobligatorio sa citato in descrizione, 1 esemplare  sacres procura o riferimento procura generale  di priorità con traduzione in italiano  one o atto di cessione  completo del richiedente	Data N° Protocollo ////
UFFICIO PROVINCIALE IND. COMM. ART. DI HILANO  VERBALE DI DEPOSITO NUMERO DI DOMANDA MI 93 A 002337 V Reg.A  L'anno millenovecento Novantatre Quattro del mese di Novembre il giorno Quattro del mese di Novembre il giorno finindentali) sopraindicato(i) ha(hanno) presentato a me sottoscritto la presente domanda, corredata di n. Oo fogli aggiuntivi per la concessione del brevetto soprariportato.	N. es.  Ooc. 1) 1 PROV n. pag. 21 riassunto co  Ooc. 2) 1 PROV n. tav. 02 disegno (ob  Ooc. 3) 3 RIS lemma in  Ooc. 4) 1 RIS designazion  Ooc. 5) 0 RIS documenti  Ooc. 6) 0 RIS autorizzazio  Ooc. 7) 0 nominativo  9) artestati di versamento, totale lire 565.00	pobligatorio sa citato in descrizione, 1 esemplare  RADENE PROCURA O riferimento procura generale  di priorità con traduzione in italiano  pone o atto di cessione  completo del richiedente  OO (Cinquecentosessantacinquemila)	Data No Protocollo
VERBALE DI DEPOSITO NUMERO DI DOMANDA MI 93 A 002337 V Reg.A  L'anno millenovecento Novantatre Quattro del mese di Novembre il (i) richiedente(i) sopraindicato(i) ha(hanno) presentato a me sottoscritto la presente domanda, corredata di n. Oo logli aggiuntivi per la concessione del brevetto soprariportato.	N. es.  Ooc. 1) 1 PROV n. pag. 21 riassunto co Ooc. 2) 1 PROV n. tav. 012 disegno (ob Ooc. 3) 13 RIS lemma fin Ooc. 4) 1 RIS designazion Ooc. 5) 0 RIS documenti designazion Ooc. 6) 0 RIS autorizzazion Ooc. 7) 0 nominativo 8) artestati di versamento, totale lire 565.01 9) marche da bollo per artestato di brevetto di lire COMPILATO IL 012 1 1 1 19 9 3	pobligatorio sa citato in descrizione, 1 esemplare  RADENE PROCURA O riferimento procura generale  di priorità con traduzione in italiano  pone o atto di cessione  completo del richiedente  OO (Cinquecentosessantacinquemila)	Data No Protocollo
VERBALE DI DEPOSITO NUMERO DI DOMANDA MI 93 A 002337 V Reg.A  L'anno millenovecento Novantatre Quattro del mese di Novembre il (i) richiedente(i) sopraindicato(i) ha(hanno) presentato a me sottoscritto la presente domanda, corredata di n. Oo logli aggiuntivi per la concessione del brevetto soprariportato.	N. es.  Ooc. 1) 1 PROV n. pag. 21 riassunto co  Ooc. 2) 1 PROV n. tav. O 2 disegno (ob  Ooc. 3) 3 RIS lemma d'ar  Ooc. 4) 1 RIS designazion  Ooc. 5) 0 RIS autorizzazio  Ooc. 7) 0 nominativo  8) artestato di versamento, totale lire 565.01  9) marche da bollo per artestato di brevetto di lire COMPILATO IL 012 1 1 1 19 9 3  CONTINUA SI/NO SI	completo del richiedente  CO (Cinquecentosessantacinquesila).=	Data No Protocollo
VERBALE DI DEPOSITO NUMERO DI DOMANDA MI 93 A 002337 V Reg.A  L'anno millenovecento Novantatre Quattro del mese di Novembre il (i) richiedente(i) sopraindicato(i) ha(hanno) presentato a me sottoscritto la presente domanda, corredata di n. O logli aggiuntivi per la concessione del brevatto soprariportato.	N. es.  Ooc. 1) 1 PROV n. pag. 21 diassunto co  Ooc. 2) 1 PROV n. tav. 02 disegno (ob  Ooc. 3) 3 RIS lemma dia  Ooc. 4) 1 RIS designazion  Ooc. 5) 0 RIS documenti designazion  Ooc. 6) 0 RIS autorizzazio  Ooc. 7) 0 nominativo  9) artestato di versamento, totale lire 565.01  9) marche da bollo per artestato di brevetto di lire COMPILATO IL 012 1 1 1 19 9 3 F  CONTINUA SI/NO SI	pobligatorio se citato in descrizione, 1 esemplare  AZONIX procura o riferimento procura generale  di priorità con traduzione in italiano  one o atto di cessione  completo del richiedente  OO (Cinquecentosessantacinquemila)  IRMA DEL(I) RICHIEDENTE (I)	Data No Protocollo
il(i) richiedente(i) sopraindicato(i) ha(hanno) presentato a me sottoscritto la presente domanda, corredata di n	N. es.  Ooc. 1) 1 PROV n. pag. 21 riassunto co Ooc. 2) 1 PROV n. tav. O12 disegno (ob Ooc. 3) 13 PIS lemma in Ooc. 4) 1 PIS designazion Ooc. 5) 0 PIS documenti designazion Ooc. 6) 0 PIS autorizzazio Ooc. 7) 0 nominativo 8) artestati di versamento, totale lire 565.01 9) marche da bollo per artestato di brevetto di lire COMPILATO IL 012 1 1 19 9 3 F CONTINUA SI/NO SI	pobligatorio se citato in descrizione, 1 esemplare  RADINA procura o riferimento procura generale  di priorità con traduzione in italiano  pine o atto di cessione  completo del richiedente  OO (Cinquecentosessantacinquesila)  IRMA DEL(I) RICHIEDENTE (I)  IL sandatario Dr. G.	Data No Protocollo
il(i) richiedente(i) sopraindicato(i) ha(hanno) presentato a me sottoscritto la presente domanda, corredata di n logli aggiuntivi per la concessione del brevetto soprariportato.	N. es.  Ooc. 1) 1 PROV n. pag. 21 riassunto co  Ooc. 2) 1 PROV n. tav. O 2 disegno (ob  Ooc. 3) 3 RIS lemma kin  Ooc. 4) 1 RIS designazion  Ooc. 5) 0 RIS documenti designazion  Ooc. 6) 0 RIS autorizzazion  Ooc. 7) 0 nominativo  9) artestati di versamento, totale lire 565.00  9) marche da bollo per artestato di brevetto di lire COMPILATO IL 012 1 1 1 1993 F  CONTINUA SI/NO SI  DEL PRESENTE ATTO SI RICHIEDE COPIA AUTENTICA SI  UFFICIO PROVINCIALE IND. COMM. ART. DI 44.	pobligatorio se citato in descrizione, 1 esemplare  servicio procura o riferimento procura generale  di priorità con traduzione in italiano  one o atto di cessione  completo del richiedente  OO (Cinquecentosessantacinquesila)  IRMA DEL(I) RICHIEDENTE (I)  IL sandatario Dr. G  ILANO  MI 93 A 002337  Reg.A	Data No Protocollo
I. ANNOTAZIONI VARIE DELL'UFFICIALE ROGANTE	N. es.  Ooc. 1) 1 PROV n. pag. 21 diassunto co  Ooc. 2) 1 PROV n. tav. O 2 disegno (ob  Ooc. 3) 3 RIS lemma dia  Ooc. 4) 1 RIS designazion  Ooc. 5) 0 RIS documenti dia  Ooc. 6) 0 RIS autorizzazio  Ooc. 7) 0 nominativo  8) artestato di versamento, totale lire 565.01  9) marche da bollo per artestato di brevetto di lire COMPILATO IL 0121171993 F  CONTINUA SI/NO SI RICHIEDE COPIA AUTENTICA SI/  UFFICIO PROVINCIALE IND. COMM. ART. DI 44  VERBALE DI DEPOSITO NUMERO DI DOMANDA	pobligatorio se citato in descrizione, I esemplare  EXAMPA POCUMA O riferimento procura generale  LI priorità con traduzione in italiano  LI priorità con traduzione i	Data Novembre
	N. es.  Ooc. 1) 1 PROV n. pag. 21 riassunto co Ooc. 2) 1 PROV n. tav. O 2 disegno (ob Ooc. 3) 3 RIS designazion Ooc. 4) 1 RIS designazion Ooc. 5) 0 RIS documenti Ooc. 6) 0 RIS autorizzazio Ooc. 7) 0 nominativo 8) artestati di versamento. totale lire 565.01 9) marche da bollo per artestato di brevetto di lire COMPILATO IL 012 1 1 19 9 3 F CONTINUA SI/NO SII  DEL PRESENTE ATTO SI RICHIEDE COPIA AUTENTICA SI UFFICIO PROVINCIALE IND. COMM. ART. DI VERBALE DI DEPOSITO NUMERO DI DOMANDA L'anno millenovecento NOVAN TATTE	pobligatorio se citato in descrizione, 1 esemplare  EXAMPINA PROCURA O riferimento procura generale  di priorità con traduzione in italiano  pine o atto di cessione  completo del richiedente  OO (Cinquecentosessantacinquemila)  IRMA DEL(I) RICHIEDENTE (I)	Data Novembre
	N. es.  Ooc. 1) 1 PROV n. pag. 21 riassunto co  Ooc. 2) 1 PROV n. tav. O 2 disegno (ob  Ooc. 3) 3 RIS designazion  Ooc. 4) 1 RIS designazion  Ooc. 5) 0 RIS documenti  Ooc. 6) 0 RIS autorizzazio  Ooc. 7) 0 nominativo  9) artestati di versamento, totale lire 565.00  9) marche da bollo per artestato di brevetto di lire  COMPILATO IL 012 1 17 1993 F  CONTINUA SI/NO SI  OEL PRESENTE ATTO SI RICHIEDE COPIA AUTENTICA SI  UFFICIO PROVINCIALE IND. COMM. ART. DI  VERBALE DI DEPOSITO NUMERO DI DOMANDA NOVANTATE  L'anno millenovecento NOVANTATE	pobligatorio se citato in descrizione, 1 esemplare  EXAMPINA PROCURA O riferimento procura generale  di priorità con traduzione in italiano  pine o atto di cessione  completo del richiedente  OO (Cinquecentosessantacinquemila)  IRMA DEL(I) RICHIEDENTE (I)	Data Novembre
	N. es.  Ooc. 1) 1 PROV n. pag. 21 riassunto co  Ooc. 2) 1 PROV n. tav. O 2 disegno (ob  Ooc. 3) 3 RIS designazion  Ooc. 4) 1 RIS designazion  Ooc. 5) 0 RIS documenti  Ooc. 6) 0 RIS autorizzazio  Ooc. 7) 0 nominativo  9) artestati di versamento, totale lire 565.00  9) marche da bollo per artestato di brevetto di lire  COMPILATO IL 012 1 17 1993 F  CONTINUA SI/NO SI  OEL PRESENTE ATTO SI RICHIEDE COPIA AUTENTICA SI  UFFICIO PROVINCIALE IND. COMM. ART. DI  VERBALE DI DEPOSITO NUMERO DI DOMANDA NOVANTATE  L'anno millenovecento NOVANTATE	pobligatorio se citato in descrizione, 1 esemplare  EXAMPINA PROCURA O riferimento procura generale  di priorità con traduzione in italiano  pine o atto di cessione  completo del richiedente  OO (Cinquecentosessantacinquemila)  IRMA DEL(I) RICHIEDENTE (I)	Data Novembre

The second secon		eriania Programa de la composición de la compo	The state of the s		AGGIUNTA MODULO
FOGLIO AGGIUNTIVO n.	di terali 01	DOMANDA N. MI	93 A 002	337	REG. A
A. RICHIEDENTE (I)	•		,		N.
LL Denominazione					
Residenza	•			codice	<u> </u>
Denominazione					
Residenza				codice	<u> </u>
1 Denominazione					
Residenza				codice	Liliani
1 Denominazione					
Residenza				codice	
L Denominazione					
Residenza				codice	
☐ Denominazione ☐			-		
Ŗesidenza				codice	
. INVENTORI DESIGNATI					
cognome nome			cognome nome	•	•
CKADA Osamu	<del></del>				
- □	<u>/</u>		l L		
IJĹ <u></u>			·		
IJ <u>└</u>			L		
<b>Ц</b>			L		
니		ليا لـــــا			
<u> </u>			L		
<b>⊔</b> ∟	<del></del>				
<u> </u>			L	-	•
J L					
PRIORITÀ					SCIOGLIMENTO RISERVE
nazione o organizzazione	tipo di priorità	numero di domanda	data di deposito	allegato S/R	Data Nº Protocoilo
┙└			بيا/ليا/لي		

SPAZIO RISERVATO ALL'UFFICIO CENTRALE BREVETTI

Il mandatario Dr. Carlo Cioni

الا

FIRMA DEL (I) RICHIEDENTE (I)

السيا/ليا/ليا لـــ

با لبنا/لنا/لبنا ل

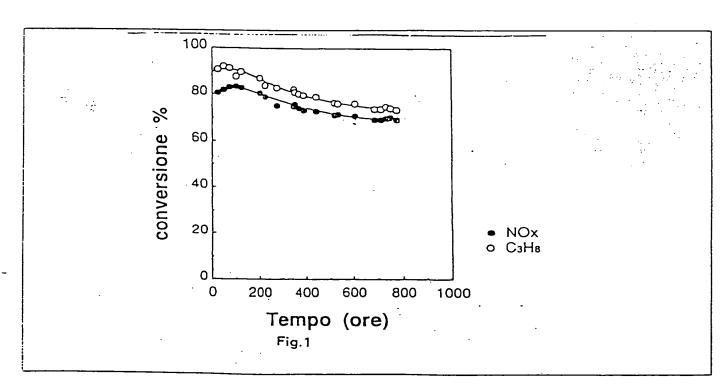
DATA DI DEPOSITO CATA DI RILASCIO CATA DI RILASCIO

NUMERO BREVE	1110 L										DATA DI RILASCIO	[]/[/
ο, τποιο	"PROCESSO	PER	LA	RIDUZIONE	CATALITICA	OI	NO.	NEI	FUMI	01	COMBUSTIONE	
!		-										

#### L. RIASSUNTO

La presente invenzione riguarda un processo per la riduzione catalitica degli ossidi d'azoto, presenti nei fumi di combustione, che consiste nel porre a contatto questi fumi con una zeolite beta scambiata con sali di cobalto, in presenza di un idrocarburo leggero come riducente.

M. DISEGNO



ENIRICERCHE S.p.A, OSAKA GAS CO. LTD Descrizione

La presente invenzione riguarda un processo per la riduzione catalitica degli ossidi d'azoto, presenti nei fumi di combustione, che consiste nel porre a contatto questi fumi con una zeolite beta scambiata con sali di cobalto, in presenza di un idrocarburo leggero come riducente.

L'emissione di ossidi d'azoto (  $NO e NO_2$  ), comunemente definiti come  $NO_X$ , da sorgenti mobili, come le automobili, e da sorgenti stazionarie, come turbine a gas e centrali termiche, costituisce una delle principali fonti di inquinamento atmosferico. Le tecniche più efficaci per l'abbattimento di  $NO_X$  nei fumi di combustione possono essere classificate in due categorie:

- 1) trattamenti in fiamma che limitino la formazione di NO  $_{\rm x}$ ;
- 2) trattamenti di post-combustione.

Tipici trattamenti in fiamma riguardano ad esempio variazioni della stechiometria della reazione o riduzione della temperatura di combustione. Tali trattamenti permettono di conseguire solo limitati successi nella riduzione della formazione di NO<sub>x</sub>.

Tra i trattamenti di post-combustione i processi catalitici risultano essere quelli più vantaggiosi. Attualmente l'abbattimento degli ossidi d'azoto viene realizzato industrialmente attraverso la riduzione catalitica selettiva

- ( processo SCR ) effettuata con ammoniaca, in presenza di un catalizzatore costituito da  $V_2O_5/TiO_2$ , ad una temperatura di 300 e 400°C. E' descritta una conversione di ossidi di azoto di circa il 90% che però diminuisce nelle condizioni di esercizio. Questo processo presenta inoltre notevoli inconvenienti come ad esempio:
- a) costo del catalizzatore e suo breve tempo di vita dovuto ad avvelenamento e a fenomeni di sintering;
- b) presenza di ammoniaca non reagita che di per se stessa costituisce un agente inquinante;
- c) reazione tra ammoniaca e solfati con formazione di  $\mathrm{NH_4HSO_4}$  e  $(\mathrm{NH_4})_2\mathrm{SO_4}$  che corrodono
  componenti dell'impianto e avvelenano il
  catalizzatore;
- d) difficoltà di stoccaggio, maneggiamento e uso di ammoniaca nell'impianto.

A causa di questi problemi sono stati studiati, da una parte, processi che potessero permettere di effettuare la decomposizione catalitica diretta degli NO<sub>X</sub>, dall'altra, processi di riduzione catalitica in presenza di riducenti diversi dall'ammoniaca. Per entrambi i tipi di processo i catalizzatori più promettenti sono risultati essere quelli di tipo zeolitico scambiati con sali di metalli di transizione.

Per quanto riguarda i processi di decomposizione catalitica diretta, che utilizzano preferibil-mente zeoliti ZSM-5 scambiate con Cu<sup>2+</sup> ( Iwamoto, Yahiro, Shokubai, Catalyst, 1989, 31, 112 ), i principali inconvenienti sono:

- breve vita del catalizzatore dovuta al fatto che i suoi siti attivi vengono avvelenati dall'ossigeno che si forma man mano che procede la reazione di decomposizione,
- drastica diminuzione della conversione qualora sia presente ossigeno in eccesso, come normalmente si verifica nelle condizioni di esercizio. A causa di questi problemi la ricerca si è principalmente sviluppata nella direzione di processi di riduzione catalitica di NO<sub>X</sub> con riducenti diversi dall'ammoniaca. Come possibili riducenti che non presentassero problemi ambientali sono stati individuati gli idrocarburi leggeri. Il

loro impiego permette di operare anche in presenza di ossigeno. Ad esempio Hamada et al.

(Appl. Catal., 64 L1-L4, 1990 ) descrivono la riduzione di NO<sub>X</sub> in gas contenenti ossigeno che utilizza, come catalizzatore, zeoliti in forma acida e allumina e, come riducente, propano o propene. I migliori risultati descritti consistono in una conversione del 65% ottenibile con una H-mordenite a 400°C.

Iwamoto et al. ( Shokubai 32,(6), 430, 1990 ) utilizzano zeoliti scambiate con rame e idrocarburi leggeri come riducenti. I risultati ottenibili dipendono sia dalla concentrazione di idrocarburo che dalla concentrazione di ossigeno. In presenza di forti eccessi di ossigeno o a concentrazioni non elevate di idrocarburo si osserva una notevole diminuzione della conversione. In EP 499087 e EP 499286 viene descritto un metodo per purificare gas esausti, ricchi di ossigeno, contenenti NO<sub>x</sub>, CO e metano, in presenza di zeoliti del tipo Y, Ferrierite, Mordenite, ZMS-5 e ZMS-11 scambiate con sali di metalli di transizione. La più alta conversione di  $NO_{_{_{
m X}}}$  ottenibile è di 50% e viene realizzata utilizzando una zeolite ZSM-5 scambiata con cobalto (Co-ZMS-5) e operando a

400-500°C.

In US 5149512 viene descritto un processo catalitico per la distruzione di NO<sub>X</sub> in fumi di combustione che utilizza come catalizzatore zeoliti aventi un rapporto silicio/alluminio > 2,5 scambiate con cationi scelti tra cobalto, nichel, ferro, cromo, rodio e manganese. Preferibilmente le zeoliti utilizzate sono di tipo MFI e MOR, ma viene anche citata genericamente una zeolite Beta scambiata con cobalto. Questo processo consiste nel porre in contatto con dette zeoliti i fumi di combustione contenenti NO<sub>X</sub> e ossigeno, in presenza esclusivamente di metano come agente riducente.

E' stato ora da noi inaspettatamente trovato che l'impiego di una zeolite Beta scambiata con cobalto, in combinazione con idrocarburi leggeri, diversi dal metano, come riducenti, non solo consente di realizzare un miglior abbattimento degli NO<sub>X</sub>, ma permette anche al catalizzatore di mantenere un'attività elevata per tempi molto lunghi, anche in condizioni analoghe a quelle operative.

In accordo con ciò la presente invenzione riguarda un procedimento per l'eliminazione di  $NO_{\chi}$ 

da gas di combustione, contenenti ossigeno, caratterizzato dal fatto che detti gas di combustione sono posti a contatto con un catalizzatore consistente in una zeolite Beta avente un rapporto  $SiO_2/Al_2O_3$  compreso tra 5 e 250 e un contenuto in peso di cobalto, rispetto al peso totale della zeolite, compreso tra 0,5 e 10%, in presenza di ún agente riducente scelto tra gli idrocarburi liquidi o gassosi contenenti più di un atomo di carbonio, o loro miscele, ad una pressione compresa tra -1 e 10 Kg/cm<sup>2</sup>-G, preferibilmente tra -0,1 e 3 Kg/cm<sup>2</sup>-G, ad una temperatura compresa tra 200 e 650°C, preferibilmente tra 300 e 500°C, ad una GHSV ( velocità oraria spaziale dei gas ) compresa tra 1000 e 100000, preferibilmente tra 3000 e 30000.

La zeolite Beta è descritta in US 3308069 e nei successivi EP 95304, EP 159846, EP 159847, EP 164939 e US 5164170. La sua formula empirica è

(x/n) M  $\cdot$  (1-x)  $\Omega$   $\cdot$  AlO $_2$   $\cdot$  y SiO $_2$   $\cdot$  w H $_2$ O dove x è minore di 1, y è compreso tra 5 e 250, w è minore di 4, M è uno ione metallico, n è la valenza di M e  $\Omega$  è uno ione idrogeno, uno ione ammonio, un catione organico o miscele di questi. Per il processo della presente invenzione viene

utilizzata una zeolite Beta avente un rapporto  $SiO_2/Al_2O_3$  compreso preferibilmente tra 15 e 75. Le zeoliti Beta utilizzate nel processo della presente invenzione contengono ioni cobalto in quantità in peso, rispetto al peso totale della zeolite, compresa tra 0,5 e 10 %, preferibilmente compresa tra 1 e 5 %. Queste zeoliti verranno d'ora innanzi indicate con il termine Co-Beta. Il cobalto viene introdotto per scambio ionico, condotto su di una zeolite Beta in cui M e Q sono H od un qualsiasi catione scambiabile con cobalto. Le condizioni per l'introduzione di cobalto mediante scambio ionico sono note nell'arte e non sono limitanti. Ad esempio la zeolite Beta è posta in una soluzione contenete un sale di cobalto (II) e la miscela è agitata ad una temperatura compresa tra 20 e 100°C per parecchie ore. I sali di cobalto utilizzati possono essere ad esempio acetati, nitrati, ossalati e cloruri. Preferibilmente viene utilizzato acetato di cobalto.

Per il processo della presente invenzione le zeoliti Co-Beta possono essere mescolate con un legante come ad esempio allumina, silice, titania, zirconia od altri ossidi refrattari, ed essere a forma di pellet o a nido d'ape.

L'agente riducente preferibilmente è scelto tra le paraffine con un numero di atomi di carbonio compreso tra 2 e 4, o loro miscele. Ancora più preferibilmente viene utilizzato propano o butano. La quantità di agente riducente utilizzata è compresa tra 50 e 10000 ppm (volume in ppm dei prodotti gassosi di combustione) preferibilmente tra 150 e 3000 ppm.

I gas di combustione che possono essere trattati con il procedimento della presente invenzione sono originati dalla combustione dei carburanti nel motore delle automobili, nelle turbine a gas, nei motori utilizzanti una miscela ricca in ossigeno e nelle centrali termoelettriche. I carburanti possono essere ad esempio gas di città, gas naturale, GPL, benzina, kerosene, olio pesante e carbone, preferibilmente gas naturale.

Per quanto riguarda la composizione dei gas di combustione essi possono contenere, oltre ad NO $_{\rm X}$  e O $_{\rm 2}$ , SOx, CO, CO $_{\rm 2}$ , H $_{\rm 2}$ , H $_{\rm 2}$ O, e idrocarburi compreso il metano.

 ${
m NO}_{
m X}$  può essere presente in concentrazione compresa tra 10 e 3000 ppm e  ${
m O}_{
m 2}$  può essere presente in concentrazione compresa tra 0,1 e 20 %.

### Esempio 1

# Preparazione di zeolite Co-Beta (1) con un rapporto SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>2</sub> = 22,6

Una zeolite Beta avente un rapporto  $SiO_2/Al_2O_3 =$ 22,6 viene preparata come descritto in US 3308069. 30 g di questa zeolite Beta, in forma sodica, vengono sospesi in 120 ml di una soluzione 0,2 M di acetato di cobalto (II) e mantenuti sotto agitazione magnetica per 5 ore a 60°C. Il solido viene quindi separato e lavato con 4 porzioni di 100 ml di acqua. Si ripeta la procedura di scambio. Si separa il solido per centrifugazione e lo si lava 5 volte con porzione di 200 ml di acqua. Si anidrifica a 110°C per 5 ore quindi si effettua la calcinazione a 550°C per 12 ore in flusso d'aria. L'analisi elementare della Co-Beta (1) ottenuta mostra una percentuale in peso di cobalto, sul peso totale della zeolite, del 2,54 %, pari al 77 % di scambio ionico. Il rapporto Co/Al nel catalizzatore è di 0,385.

## Esempio 2

Preparazione di zeolite Co-Beta (2) con un rapporto  $SiO_2/Al_2O_3 = 73$ 

12 g di zeolite Beta in forma sodica avente un rapporto  $\mathrm{SiO_2/Al_2O_3} = 73$ , ottenuta come descritto

in US 3308069, vengono sospesi in 50 ml di una soluzione 0,2 M di acetato di cobalto (II) e mantenuti sotto agitazione magnetica per 5 ore a 60°C. Il solido viene quindi separato e lavato con 3 porzioni di 100 ml di acqua. Si ripeta la procedura di scambio. Si separa il solido per centrifugazione e lo si lava 6 volte con porzioni di 150 ml di acqua. Si anidrifica a 110°C per 5 ore quindi si effettua la calcinazione a 550°C per 12 ore in flusso d'aria. Dall'analisi elementare della Co-Beta (2) ottenuta risulta una percentuale in peso di cobalto del 1,25 %, pari al 104 % di scambio ionico. Il rapporto Co/Al nel catalizzatore è di 0,52.

#### Esempio 3

# Preparazione di zeolite Co-Beta (3) con un rapporto SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> =22,3

80 g di zeolite Beta in forma sodica con un rapporto  $SiO_2/Al_2O_2 = 22.3$ , preparata come descritto in US 3308069 e 8 g di acetato di cobalto (II) tetraidrato vengono posti in 400 ml di acqua e mantenuti sotto agitazione magnetica per 5 ore a  $60^{\circ}$ C. Il solido viene anidrificato a  $110^{\circ}$ C per 5 ore. 60 g del solido anidrificato (a) così ottenuto e 8 g di acetato di cobalto (II) tetraidrato

vengono posti in 300 ml di acqua e mantenuti sotto agitazione magnetica per 5 ore a 60°C. Il solido viene quindi separato e lavato 6 volte con porzioni di 350 ml di acqua e infine anidrificato a 110°C per 5 ore in stufa. 20 g di questo solido secco (b) vengono calcinati a 550°C in flusso d'aria. L'analisi elementare della Co-Beta (3) così ottenuta mostra una percentuale in peso di cobalto del 2,62 %, pari al 64 % di scambio ionico. Il rapporto Co/Al nel catalizzatore è pari a 0,32.

## Esempio 4

# Preparazione di zeolite Co-Beta (4) con un rapporto SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> =22,3

40 g del solido secco (b) ottenuto nell'esempio 3 e 8 g di acetato di cobalto (II) tetraidrato vengono posti in 300 ml di acqua distillata e mantenuti sotto agitazione magnetica per 5 ore a 60°C. Il solido viene separato, lavato 6 volte con porzioni di 300 ml di acqua e quindi anidrificato a 110°C per 5 ore e calcinato a 550°C in flusso d'aria. L'analisi elementare della Co-Beta (4) così ottenuta mostra una percentuale in peso di cobalto del 2,97 %, pari al 72 % di scambio ionico. Il rapporto Co/Al nel

catalizzatore è pari a 0,36.

#### Esempio 5

## Preparazione di Cu-ZSM-5 con un rapporto

## $\frac{\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3}{2} = 56$

Una zeolite ZSM-5 con un rapporto  $SiO_2/Al_2O_3$  di 56 viene preparata come descritto in GB1402981.

A 30 g di questa zeolite, in forma sodica, sospesi in 10 ml di acqua, viene aggiunta una soluzione 0,2 M di acetato di rame (II) (35 ml). Si lascia sotto costante agitazione magnetica a 60 °C per 5 ore. Dopo aver separato e lavato il solido si ripete la procedura di scambio. Il solido così ottenuto viene separato e lavato 6 volte con porzioni di 200 ml di acqua. Si anidrifica a 120°C per 3 ore, quindi si calcina a 550°C in flusso d'aria per 12 ore. Dall'analisi elementare risulta una percentuale in peso di rame di 1,28 pari al 72 % di scambio ionico.

#### Esempio 6

# Preparazione di Co-ZSM-5 con un rapporto $SiO_{2}/Al_{2}O_{3} = 56$

Si opera come descritto nell'esempio precedente, utilizzando una soluzione di acetato di cobalto (II). Dall'analisi elementare risulta una percentuale in peso di cobalto di 1.28,

corrispondente al 83 % di scambio.

### Esempio 7

# Preparazione Co-MOR con un rapporto

# $\frac{\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3}{2} = 11.2$

15.0 g di mordenite ( Zeolon, Norton ) vengono sospesi in 110 ml di una soluzione 0,2 M di acetato di cobalto (II). Si porta a 60°C e si mantiene a questa temperatura, sotto costante agitazione magnetica, per 5 ore. Il solido viene separato, lavato e sottoposto nuovamente alla procedura di scambio. Il solido così ottenuto viene separato, lavato con 300 ml di acqua (5 volte), seccato a 120°C per 3 ore ed infine calcinato a 550°C per 12 ore. La percentuale in peso di cobalto risulta pari a 4,41 %, corrispondente al 71 % di scambio ionico.

#### Esempio 8

# Riduzione catalitica di NO con propano

# a) procedura generale :

4 cc di catalizzatore granulato e setacciato (1-2 mm) vengono posti al centro di un reattore a flusso costituito da un tubo di acciaio inossidabile. Il reattore viene portato alla temperatura desiderata sotto flusso d'elio. Alla miscela gassosa da testare viene aggiunta acqua mediante

una pompa. La miscela risultante viene quindi alimentata al reattore ad una velocità di 1 l/min (GHSV=15000). Quando la composizione del gas in uscita dal reattore diventa costante (30 min - 1 ora) si valuta la sua composizione mediante un analizzatore di NO<sub>x</sub> a chemiluminescenza e un gas cromatografo per misurare H<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, CO, CH<sub>4</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>, C<sub>3</sub>H<sub>6</sub>, C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>, C<sub>4</sub>H<sub>10</sub>. La composizione del gas viene analizzata dopo che l'acqua presente è stata condensata e rimossa.

#### b) risultati

I catalizzatori degli esempi 1-4 e i catalizzatori comparativi degli esempi 5-7 furono testati, in accordo con la procedura descritta al punto a), per la riduzione catalitica di  $NO_X$  in presenza di propano e ossigeno. I catalizzatori 5-7 sono stati scelti per realizzare gli esempi di riferimento essendo fino ad ora considerati i migliori catalizzatori per la riduzione catalitica selettiva di  $NO_X$ .

Per ogni catalizzatore la riduzione di  $NO_X$  è stata realizzata sia a 673 che a 773 K. La composizione della miscela gassosa che viene sottoposta a trattamento è la seguente: NO = 500 ppm; CO = 1000 ppm;

 $H_2O=9\%$ ; propano = 1000 ppm. In tabella 1 vengono riportati i valori ottenuti di conversione di  $NO_X$  e, tra parentesi, i valori di conversione del propano:

## TABELLA 1

Co-MOR

n.es. catalizzatore 673 773	
1 Co-beta(1) 72.1 (94.0) 72.7 (	100.0)
2 Co-beta(2) 42.6 (56.8) 62.4 (	96.7)
3 Co-beta(3) -58.1 (61.6) 73.8 (8	83.7)
4 Co-beta(4) 76.5 (96.2) 81.4 (9	99.7)
5 Cu-ZMS-5 13.9 (32.5) 39.0 (3	100.0)
6 Co-ZSM-5 28.6 (48.4) 49.6 (8	39.7)

La conversione di NO  $_{\chi}$  è stata calcolata nel modo seguente:

14.6 (21.6) 30.6 (100.0)

conversione NO $_{\rm X}(\%)=({\rm NO}_{\rm X(i)}^{}-{\rm NO}_{\rm X(f)}^{})/{\rm NO}_{\rm X(i)}^{}$  X 100 dove NO $_{\rm X(i)}$  è la concentrazione di NO $_{\rm X}$  alimentato al reattore, e NO $_{\rm X(f)}$  è la concentrazione di NO $_{\rm X}$  in uscita dal reattore. In modo analogo è stata calcolata la conversione del propano.

I risultati di conversione riportati in tabella 1 mostrano come l'utilizzo di una zeolite beta scambiata con cobalto, in combinazione con propano come riducente, permetta di ottenere

migliori conversioni di quelle fornite nelle stesse condizioni dai migliori catalizzatori utilizzati nella prior art.

# Esempio 9 di confronto: riduzione di NO catalizzata da Co-beta in presenza di metano

Il catalizzatore preparato secondo l'esempio 1 è stato testato, in accordo con la procedura descritta al punto a) dell'esempio 8, per la riduzione catalitica di NO<sub>X</sub> in presenza di metano e ossigeno, come descritto in US 5,149,512.

La riduzione di  $NO_X$  è stata realizzata sia a 673 che a 773 K. La composizione della miscela gassosa che viene sottoposta a trattamento è la sequente: NO = 500 ppm; CO = 1000 ppm;  $H_2 = 660$  ppm;  $O_2 = 10$ %;  $CO_2 = 6$ %;  $H_2O = 9$ %; metano = 2000 ppm. In tabella 2 vengono riportati i valori ottenuti di conversione di  $NO_X$  e, tra parentesi, i valori di conversione del metano:

#### TABELLA 2

temperatura (K)

n.es. catalizzatore 673 773

1 Co-beta 0.0 (3.0) 7.5 (26.9)

Appare evidente che utilizzando una zeolite beta scambiata con cobalto in combinazione con propano si ottengono risultati di gran lunga superiori a

quelli ottenibili utilizzando questa zeolite in combinazione con metano come riducente, come descritto in US 5,149,512.

# Esempio 10 : test di durata

Il catalizzatore dell'esempio 2 è stato testato per la riduzione di  $^{
m NO}_{
m x}$  per un intervallo di tempo di 800 ore. E' stata utilizzata la procedura descritta al punto a) dell'esempio 8 alla temperatura di 773 K. La composizione della miscela gassosa che viene sottoposta a trattamento è la seguente: NO = 150 ppm; CO = 500 ppm;  $H_2$  =  $ppm; o_2 = 10 \%; co_2 = 6\%; H_2 o = 9\%; so_2 =$ 0,3 ppm; metano = 1000 ppm; propano = 500 ppm. L'andamento della conversione % di  $NO_{_{\mbox{\scriptsize X}}}$  in funzione del tempo è riportato nel grafico di figura 1. Da tale grafico appare evidente che la zeolite Co-beta utilizzata nella presente invenzione possiede un tempo di vita molto elevato e la sua attività si mantiene ad un ottimo livello anche dopo 800 ore di utilizzo. La presenza di metano nella miscela gassosa non contribuisce ai risultati ottenuti, come già dimostrato nel precedente esempio n.9.

# Esempio 11 : test di durata di confronto

Il catalizzatore dell'esempio 5, di confronto, è

stato testato per la riduzione di  $NO_X$  per un intervallo di tempo di 700 ore. E' stata utilizzata la procedura descritta al punto a) dell'esempio 8 alla temperatura di 773 K. La composizione della miscela gassosa che viene sottoposta a trattamento è uguale a quella dell'esempio 10.

L'andamento della conversione % di NO<sub>x</sub> in funzione del tempo è riportato nel grafico di figura 2. Da tale grafico appare evidente che il catalizzatore della prior art ha una notevole tendenza a deteriorarsi e dopo 700 ore la sua attività è diminuita del 25 %.

## Rivendicazioni

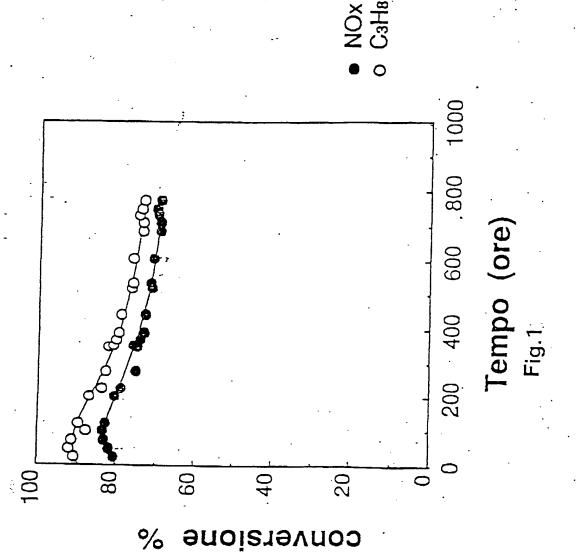
- di combustione, contenenti ossigeno, caratterizzato dal fatto che detti gas di combustione sono posti a contatto con un catalizzatore consistente in una zeolite Beta avente un rapporto SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> compreso tra 5 e 250 e un contenuto in peso di cobalto, rispetto al peso totale della zeolite, compreso tra 0,5 e 10 %, in presenza di un agente riducente scelto tra gli idrocarburi liquidi o gassosi contenenti più di un atomo di carbonio, o loro miscele, ad una pressione compresa tra -1 e 10 Kg/cm<sup>2</sup>-G, ad una temperatura compresa tra 200 e 650°C, ad una GHSV compresa tra 1000 e 100000.
- 2) Procedimento in accordo con la rivendicazione 1 in cui la zeolite Beta ha un rapporto  $SiO_2/Al_2O_3$  compreso tra 15 e 75.
- 3) Procedimento in accordo con la rivendicazione l in cui il contenuto in peso di cobalto, rispetto al peso totale della zeolite, è compreso tra 1 e 5 %.
- 4) Procedimento in accordo con la rivendicazione l in cui l'agente riducente è una paraffina con un numero di atomi di carbonio compreso tra 2 e 4, o una miscela di queste.

- 5) Procedimento in accordo con 4 in cui l'agente riducente è propano o butano.
- 6) Procedimento in accordo con la rivendicazione 1 condotto ad una pressione compresa tra -0.1 e 3  $Kg/cm^2-G$ .
- 7) Procedimento in accordo con la rivendicazione 1 condotto ad una temperatura compresa tra 300 e 500°C.
- 8) Procedimento in accordo con la rivendicazione 1 condotto ad una CHSV compresa tra 3000 e 30000.
- 9) Utilizzo del procedimento in accordo con la rivendicazione l per purificare i gas di combustione scaricati dalle automobili.
- 10) Utilizzo del procedimento in accordo con la rivendicazione 1 per purificare i gas di combustione scaricati dalle turbine a gas, dai motori utilizzanti miscele ricche in ossigeno e dalle centrali termiche.

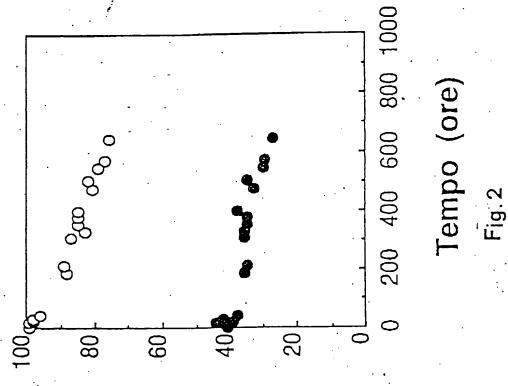
Il mandatario Dr. Carlo Cioni

2 4 NOV. 1993 -









conversione %

This Page Blank (uspto)

# This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the	e items checked:
BLACK BORDERS	
☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES	
FADED TEXT OR DRAWING	
☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING	
☐ SKEWED/SLANTED IMAGES	
COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS	·.
GRAY SCALE DOCUMENTS	
☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT	
☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POO	R QUALITY
П отнер.	

# IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.

This Page Blank (uspto)